

09.11.2004

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

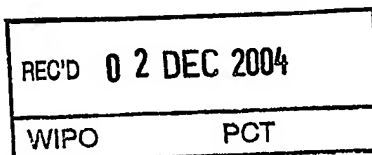
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 3 年 1 1 月 6 日

出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 3 - 3 7 6 5 1 2
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 3 - 3 7 6 5 1 2]

出 願 人
Applicant(s): 日本電気株式会社
三菱マテリアル株式会社



PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 1 0 月 2 1 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川 洋

【書類名】	特許願
【整理番号】	34103790
【提出日】	平成15年11月 6日
【あて先】	特許庁長官殿
【国際特許分類】	H01M 8/10
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	木村 英和
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	眞子 隆志
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	梶谷 浩司
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	小林 憲司
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	秋山 永治
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	吉武 務
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	佐藤 英行
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	渡辺 秀
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	西 教徳
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内
【氏名】	久保 佳実
【発明者】	
【住所又は居所】	埼玉県北本市下石戸下 4 7 6 番地 三菱マテリアル株式会社非鉄材料技術研究所内
【氏名】	加藤 公明
【発明者】	
【住所又は居所】	埼玉県北本市下石戸下 4 7 6 番地 三菱マテリアル株式会社非鉄材料技術研究所内
【氏名】	磯部 毅
【発明者】	
【住所又は居所】	埼玉県北本市下石戸下 4 7 6 番地 三菱マテリアル株式会社非鉄材料技術研究所内
【氏名】	和田 正弘

【発明者】
【住所又は居所】 埼玉県北本市下石戸下 4 7 6 番地 三菱マテリアル株式会社非鉄材料技術研究所内
【氏名】 神田 栄子
【発明者】
【住所又は居所】 埼玉県北本市下石戸下 4 7 6 番地 三菱マテリアル株式会社非鉄材料技術研究所内
【氏名】 浜田 和一
【特許出願人】
【識別番号】 000004237
【氏名又は名称】 日本電気株式会社
【特許出願人】
【識別番号】 000006264
【氏名又は名称】 三菱マテリアル株式会社
【代理人】
【識別番号】 100110928
【弁理士】
【氏名又は名称】 速水 進治
【電話番号】 03-5784-4637
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 138392
【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1
【物件名】 要約書 1
【包括委任状番号】 0110433

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

固体電解質膜と、
前記固体電解質膜の一方の面に配置された複数の燃料極と、
前記固体電解質膜の他方の面に固体電解質膜を挾持して前記複数の燃料極と対向配置された複数の酸化剤極と、
を備える燃料電池であって、
前記固体電解質膜の少なくとも一方の面に、一平面内に配置された複数の電極と、前記複数の電極の周囲にあってこれらを支持する樹脂部とを含む電極シートが配設され、
前記複数の燃料極および前記複数の酸化剤極のうち少なくとも一方が、前記電極シートに含まれる複数の電極により構成され、
相対向配置する前記燃料極および前記酸化剤極と前記固体電解質膜とにより構成される単位セルのうち、少なくとも一部が、前記固体電解質膜を貫通する導電部材を介して直列に接続されたことを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の燃料電池において、
前記電極シートに含まれる前記電極は、多孔質金属と、該多孔質金属に付着した触媒とを具備することを特徴とする燃料電池。

【請求項 3】

請求項 2 に記載の燃料電池において、
前記多孔質金属に、触媒を含む粒子と、水素イオン導電性樹脂とを含む触媒樹脂膜が付着していることを特徴とする燃料電池。

【請求項 4】

請求項 2 に記載の燃料電池において、
前記多孔質金属に、触媒を含むめっき層が形成されていることを特徴とする燃料電池。

【請求項 5】

請求項 2 乃至 4 いずれかに記載の燃料電池において、
前記多孔質金属の少なくとも一部に、疎水処理が施されたことを特徴とする燃料電池。

【請求項 6】

請求項 1 乃至 5 いずれかに記載の燃料電池において、
前記固体電解質膜の両面に前記電極シートが配設され、一方の面に配設された前記電極シートに含まれる電極が燃料極を構成し、他方の面に配設された前記電極シートに含まれる電極が酸化剤極を構成することを特徴とする燃料電池。

【請求項 7】

請求項 6 に記載の燃料電池において、
一対の前記電極シートが周縁部で封着され、その内部に前記固体電解質膜が封止されたことを特徴とする燃料電池。

【請求項 8】

請求項 1 乃至 7 いずれかに記載の燃料電池において、
前記樹脂部に埋設され、前記複数の電極のうち少なくともいずれかの電極と接続する集電部材を具備することを特徴とする燃料電池。

【請求項 9】

請求項 1 乃至 8 いずれかに記載の燃料電池において、
前記導電部材は、集電板を介することなく、前記燃料極および前記酸化剤極に接続されていることを特徴とする燃料電池。

【請求項 10】

一平面内に配置された複数の電極と、前記複数の電極の周囲にあってこれらを支持する樹脂部とを含む一対の電極シートを、固体電解質膜の両面にそれぞれ配置し、前記一対の電極シートを熱プレスして前記電極シートの周縁部を封着する工程を含むことを特徴とする燃料電池の製造方法。

【請求項 11】

請求項 10 に記載の燃料電池の製造方法において、

熱プレスを行う前記工程で、前記固体電解質膜の一方の側にある前記多孔質金属と、前記固体電解質膜の他方の側にある前記多孔質金属とが固体電解質膜を挟んで重なり合う位置に導電部材を配置した状態で前記一对の電極シートを熱プレスし、前記一对の電極シートの周縁部を封着するとともに、前記固体電解質膜のそれぞれの面にある多孔質金属を接続する導電部材を形成することを特徴とする燃料電池の製造方法。

【請求項 12】

請求項 11 に記載の燃料電池の製造方法において、

前記導電部材を形成する工程は、

導電性のリベットを、前記多孔質金属および前記固体電解質膜を含む積層体に貫通させるとともに、その上端および下端を拡径した形状とすることにより前記導電部材を形成する工程を含むことを特徴とする燃料電池の製造方法。

【請求項 13】

請求項 10 乃至 12 いずれかに記載の燃料電池の製造方法において、

前記電極シートに含まれる前記電極は、多孔質金属と、該多孔質金属に付着した触媒とを具備することを特徴とする燃料電池の製造方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池およびその製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、固体電解質膜に複数の単位セルを配した燃料電池およびその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

固体高分子型燃料電池は、パーフルオロスルホン酸膜等のイオン交換膜を電解質とし、このイオン交換膜の両面に燃料極および酸化剤極の各電極を接合して構成され、燃料極に水素、酸化剤極に酸素あるいは空気を供給して電気化学反応により発電する装置である。この反応を起こすために、通常、固体高分子型燃料電池は、イオン交換膜と、その両面に形成される触媒物質が担持された炭素微粒子と固体高分子電解質との混合体からなる触媒層と、燃料および酸化ガスの供給と拡散を目的とする多孔質性炭素材料からなるガス拡散層（供給層）と、炭素あるいは金属の導電性薄板からなる集電体とで構成されている。

【0003】

また近年では、上記と同様の構成で、燃料としてメタノールなどの有機液体燃料を直接燃料極に供給する直接メタノール型固体高分子型燃料電池の研究開発も活発に行われている。

【0004】

上記の構成において、燃料極に供給された燃料は、拡散層（供給層）中の細孔を通過して触媒に達し、触媒により燃料が分解されて、電子と水素イオンが生成される。電子は電極中の触媒担体とガス拡散層（供給層）とを通過して外部回路へ導き出され、外部回路より酸化剤極に流れ込む。一方、水素イオンは電極中の電解質および両電極間の固体高分子電解質膜を通過して酸化剤極に達し、酸化剤極に供給された酸素と外部回路より流れ込む電子と反応して水を生じる。この結果、外部回路では燃料極から酸化剤極へ向かって電子が流れ、電力が取り出される。

【0005】

しかしながら、この基本的構成の固体高分子型燃料電池単体の電池電圧は、各電極における酸化還元電位差に相当することから、理想的な開放電圧であっても高々1.23Vである。このため、様々な機器に搭載する駆動電源としては電池出力に関し、必ずしも充分とは言えない。例えば、携帯用機器の駆動電源に燃料電池を使用する場合、それらの機器の多くは電源として1.5～4V程度以上の入力電圧を必要とする。このため、単位セルを直列に接続し、電池の電圧を上げる必要がある。

【0006】

電池電圧を上昇させるために、単位セルを積層することにより充分な電圧を確保することが考えられるが、このようにすると電池全体の厚みが増すことから、薄型化が要請される携帯機器などの駆動電源としては好ましいとは言えない。

【0007】

こうしたことから、単位セルを一平面に複数配置し、それらを直列に接続する構成とすることが考えられる。しかしながら、このようにした場合、セル間の接続をとるための配線部材を設ける必要が生じ、電池のサイズが大きくなり、単位セルの集積度が低下する。

【0008】

これに対し、特許文献1には、複数の単位セルを同一固体電解質膜に配置し、電極間をスルーホールにより接続した燃料電池が開示されている。このような構造の燃料電池によれば、単位セルを効率的に集積し、燃料電池の小型軽量化を図ることができる。

【特許文献1】特開2002-110215号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

ところが、従来の燃料電池では、触媒層の背面に集電板を設けていたため、燃料電池の薄型化、小型軽量化を図る上で大きな制約となっていた。たとえば上記特許文献1では、Pt ポーラス電極の集電部材としてイオン伝導体板が設けられている（図5、段落0033）。また、一般に、従来の燃料電池の電極では、炭素材料を基材とするガス拡散層の表面に触媒層を設け、発生した電子の集電効率を高めるために集電部材を設けていた。

【0010】

集電部材は、その機能を果たすためにはある程度の厚みを有することが必要となる。このため、燃料電池厚み方向のサイズが大きくなるという課題を有していた。

【0011】

また、固体電解質膜に複数の電極を配設する場合、固体電解質膜と電極との間の密着性を十分に確保する必要がある。この間の密着不良が生じると、燃料の漏出や、電流リーク発生の原因となる。

【0012】

本発明は上記事情に鑑みなされたものであって、その目的とするところは、複数の単位セルを含む燃料電池において、単位セルの高集積化を図るとともに、燃料電池の小型化・薄型化および軽量化を図ることにある。また、本発明の別の目的は、燃料の漏出や電流リークの発生を抑制した、高い信頼性を有する燃料電池を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0013】

本発明によれば、固体電解質膜と、前記固体電解質膜の一方の面に配置された複数の燃料極と、前記固体電解質膜の他方の面に固体電解質膜を挾持して前記複数の燃料極と対向配置された複数の酸化剤極と、を備える燃料電池であって、前記固体電解質膜の少なくとも一方の面に、一平面内に配置された複数の電極と、前記複数の電極の周囲にあってこれらを支持する樹脂部とを含む電極シートが配設され、前記複数の燃料極および前記複数の酸化剤極のうち少なくとも一方が、前記電極シートに含まれる複数の電極により構成され、相対向配置する前記燃料極および前記酸化剤極と前記固体電解質膜とにより構成される単位セルのうち、少なくとも一部が、前記固体電解質膜を貫通する導電部材を介して直列に接続されたことを特徴とする燃料電池が提供される。

【0014】

この燃料電池において、導電部材は、一の単位セルの燃料極と、これに隣接する他の単位セルの酸化剤極とを接続する態様で設けることができる。

【0015】

本発明においては、燃料極や酸化剤極が一平面に複数配置された構造を採用する。そして、固体電解質膜の一方の側に燃料極、他方の側に酸化剤極を配置する。固体電解質膜の少なくとも一方の側に、一平面内に配置された複数の電極と、この複数の電極の周囲にあってこれらを支持する樹脂部とを含む電極シートを配置し、この電極シートに含まれる電極を、燃料極または酸化剤極とする。本発明はこうした構成を採用するため、単位セルの高集積化を図るとともに、燃料電池の小型化・薄型化および軽量化を図ることができる。また、固体電解質膜上に、酸化剤極や燃料極を設計通りのパターンで正確に配置することが可能となる。また、燃料極および酸化剤極の両方にシートを適用することとすれば、これらの位置合わせを容易にかつ正確に行うことが可能となる。このため、燃料電池の信頼性を顕著に向上させることができる。

【0016】

また、本発明では、固体電解質膜を貫通する導電部材により、隣接セル間の電気的接続がとられる。燃料極と酸化剤極とは、固体電解質膜を貫通する導電部材により接続される。このため、セル間を接続する部材を最小限のスペースで設けることができ、セルの集積化および燃料電池の小型化を図ることができる。

【0017】

導電部材は、各電極を構成する多孔質金属に接して設けることができ、この場合、集電板が不要となる。すなわち、導電部材が、集電板を介することなく、前記燃料極および前

記酸化剤極に接続された構成とすることができる。こうすることにより、一層、燃料電池の小型化・薄型化および軽量化を図ることができる。従来、電極を構成する部材として、カーボンペーパーのような炭素繊維が主として用いられてきたが、本発明では、多孔質金属を触媒の支持体として用いている。この支持体は金属で構成されるため、カーボンに比べて電気抵抗が低く、集電板がなくとも電池用電極として十分に機能する。

【0018】

導電部材は、燃料極や酸化剤極に直接接して設けてもよいし、多孔質金属の周縁部に金属部材を設け、この金属部材を介して多孔質金属に接続する構造としてもよい。例えば、燃料極や酸化剤極の周縁に沿って金属部材を配置し、この金属部材に接して導電部材を配設してもよい。

【0019】

電極シートに含まれる電極は、多孔質金属と、該多孔質金属に付着した触媒とを具備する構成としてもよい。また、従来の電池を構成するカーボンペーパー等の炭素材料の表面は疎水性であったため、表面の親水化が困難であった。これに対し、本発明で用いられる多孔質金属の表面は、炭素材料に比べて親水性である。このため、たとえばメタノール等を含む液体燃料を燃料極に供給する場合、燃料極への液体燃料の浸透が従来の電極より促進される。このため、燃料の供給効率を向上させることができる。

【0020】

本発明における燃料極および酸化剤極は、多孔質金属に触媒が担持された構成とすることができる。たとえば、多孔質金属に、触媒を含む粒子と、水素イオン導電性樹脂とを含む触媒樹脂膜が付着した構成とすることができる。また、多孔質金属に、触媒を含むめっき層が形成された構成とすることもできる。触媒の担持された導電粒子とは、白金粒子等の触媒粒子そのものであってもよいし、白金担持炭素粒子等の触媒の担持された導電粒子等が挙げられる。

【0021】

多孔質金属の少なくとも一部に、疎水処理を施しても良い。多孔質金属の表面は、炭素材料に比べて親水性であるが、疎水性処理を施すことにより、電極内に親水性の領域と疎水性の領域を容易に設けることができる。こうすれば、酸化剤極に水の排出経路が確保され、フラッドイングが抑制される、このため、すぐれた出力を安定的に発揮させることが可能となる。

【0022】

このとき、必要に応じて多孔質金属シートの空隙中に疎水性物質を配置してもよい。こうすることにより、電極中の水分の排出が一層促進され、また、気体の通過経路が好適に確保される。よって、たとえば燃料電池用電極を酸化剤極に用いた場合、酸化剤極で生成する水を好適に電極外部に排出することが可能となる。

【0023】

本発明において、固体電解質膜の両面に第一および第二の電極シートを配設し、これらの電極シートを周縁部で封着し、その内部に固体電解質膜を封止する構成とすることができる。電極材料を多孔質金属とした場合、電極と固体電解質膜とは異種材料により構成されることとなるため、両者の間の密着不良が問題となる。密着不良が生じると、前述したように燃料の漏出や電流リークの原因となる。上記構成によれば、燃料漏出や電流リークの課題を効果的に解決することができる。

【0024】

さらに本発明によれば、一平面内に配置された複数の電極と、前記複数の電極の周囲にあってこれらを支持する樹脂部とを含む一対の電極シートを、固体電解質膜の両面にそれぞれ配置し、前記一対の電極シートを熱プレスして前記電極シートの周縁部を封着する工程を含むことを特徴とする燃料電池の製造方法が提供される。

【0025】

ここで、熱プレスを行う前記工程において、前記固体電解質膜の一方の側にある前記多孔質金属と、前記固体電解質膜の他方の側にある前記多孔質金属とが固体電解質膜を挟ん

で重なり合う位置に導電部材を配置した状態で前記一对の電極シートを熱プレスし、前記一对の電極シートの周縁部を封着するとともに、前記固体電解質膜のそれぞれの面にある多孔質金属を接続する導電部材を形成するようにしてもよい。ここで、導電部材により接続される各多孔質金属は、それぞれ、一のセルの燃料極と、これと隣接する他のセルの酸化剤極に相当する。

導電部材を形成する工程は、種々の構成を採用することができる。たとえば、導電性のリベットを、前記多孔質金属および前記固体電解質膜を含む積層体に貫通させるとともに、その上端および下端を拡径した形状とすることにより前記導電部材を形成する工程を含むようにしてもよい。こうすることにより、対向する一对の多孔質金属（燃料極と酸化剤極）が、固体電解質膜を貫通する導電部材により接続される。これにより、セルの集積化された燃料電池を安定的に製造することができる。

【0026】

上記製造方法によれば、小型化・薄型化および軽量化の図られた燃料電池を、製造安定性良く製造することができる。

【発明の効果】

【0027】

本発明によれば、簡素な構造を有し、高出力かつ小型化・薄型化された固体高分子型燃料電池を提供することが可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0028】

本発明に係る燃料電池の各部の構成について説明する。

【0029】

固体電解質膜は、燃料極と酸化剤極とを隔てるとともに、両者の間で水素イオンを移動させる役割を有する。このため、固体高分子電解質膜は、水素イオンの導電性が高い膜であることが好ましい。また、化学的に安定であって機械的強度が高いことが好ましい。固体高分子電解質膜を構成する材料としては、

スルホン基、リン酸基、ホスホン基、ホスフィン基などの強酸基や、カルボキシル基などの弱酸基などの極性基を有する有機高分子が好ましく用いられる。こうした有機高分子として、

スルホン化ポリ（4-フェノキシベンゾイル-1,4-フェニレン）、アルキルスルホン化ポリベンゾイミダゾールなどの芳香族含有高分子；

ポリスチレンスルホン酸共重合体、ポリビニルスルホン酸共重合体、架橋アルキルスルホン酸誘導体、フッ素樹脂骨格およびスルホン酸からなるフッ素含有高分子などの共重合体；

アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸のようなアクリルアミド類とn-ブチルメタクリレートのようなアクリレート類とを共重合させて得られる共重合体；

スルホン基含有パーフルオロカーボン（ナフィオン（デュボン社製）、アシプレックス（旭化成社製））；

カルボキシル基含有パーフルオロカーボン（フレミオンS膜（旭硝子社製））；
などが例示される。

【0030】

燃料極および酸化剤極は、基材に触媒が付着した構成を有する。基材としては、発泡金属、金属不織布等の多孔質金属やカーボンペーパー等を用いることができる。このうち、多孔質金属を用いた場合、基材によって良好な集電性が得られるため好ましい。

【0031】

多孔質金属としては、ステンレス鋼（SUS）あるいはニッケル、クロム、鉄、チタン、またはこれらの合金を原料とし、多孔質化したものが例示される。これらの表面に金等をめっきしたものを基材として用いることもできる。多孔質金属の気孔率は、たとえば40%～80%程度とする。

【0032】

多孔質化の方法としては、金属を発泡させる方法等を用いることができる。具体的には、熔融した金属中にガスを吹き込む、発泡剤を投入して発泡させて凝固させて製造するなどの手法を用いることができる。水系バインダーと粉末材料と一緒に発泡剤を混合して、これを発泡・乾燥・焼結する方法を用いることもできる。

【0033】

発泡金属を用いる場合、たとえばステンレス製、ニッケル製のものが好ましく用いられる。特にステンレス製の発泡金属を用いた場合、燃料極における燃料液体に対する耐性が良好に維持されるため、燃料電池の耐久性や安全性を向上させることができる。

【0034】

燃料極および酸化剤極の具体的構成としては種々の態様を採用することができる。たとえば、多孔質金属に、触媒および水素イオン導電性樹脂を含む触媒樹脂が付着した構成とすることができる。また、多孔質金属に、触媒を含むめっき層が形成された構成とすることもできる。

【0035】

燃料極や酸化剤極に用いられる触媒としては、白金、ロジウム、パラジウム、イリジウム、オスミウム、ルテニウム、レニウム、金、銀、ニッケル、コバルト、リチウム、ランタン、ストロンチウム、イットリウムなどが例示され、これらを単独または二種類以上組み合わせる用いることができる。燃料極および酸化剤極の触媒は同じものを用いても異なるものを用いてもよい。

【0036】

触媒を導電粒子に担持する場合、当該導電粒子としては炭素粒子を好ましく用いることができる。炭素粒子としては、アセチレンブラック（デンカブラック（電気化学社製）、XC72（Vulcan社製）など）、ケッチェンブラック、カーボンナノチューブ、カーボンナノホーンなどが例示される。炭素粒子の粒径は、たとえば、 $0.01 \sim 0.1 \mu\text{m}$ 、好ましくは $0.02 \sim 0.06 \mu\text{m}$ とする。

【0037】

水素イオン導電性樹脂としては、前述の固体電解質膜の構成材料として例示したものをを用いることができ、たとえば、スルホン基含有パーフルオロカーボン（ナフィオン（デュポン社製）、アシプレックス（旭化成社製））等を好ましく用いることができる。

【0038】

多孔質金属に触媒を付着させるには種々の方法が考えられるが、たとえば以下のような方法を用いることができる。まず、炭素粒子へ触媒を担持する。これは、一般的に用いられている含浸法によって行うことができる。次に、触媒を担持させた炭素粒子と固体高分子電解質粒子を溶媒に分散させ、ペースト状とした後、これを基体に塗布、乾燥させることによって燃料極や酸化剤極を得ることができる。ここで、炭素粒子の粒径は、たとえば $0.01 \sim 0.1 \mu\text{m}$ とする。また、触媒粒子の粒径は、たとえば $1 \text{ nm} \sim 50 \text{ nm}$ とする。また、固体高分子電解質粒子の粒径は、たとえば $0.05 \sim 1 \mu\text{m}$ とする。炭素粒子と固体高分子電解質粒子とは、たとえば、重量比で $2:1 \sim 40:1$ の範囲で用いられる。また、ペースト中の水と溶質との重量比は、たとえば、 $1:2 \sim 10:1$ 程度とする。基体へのペーストの塗布方法については特に制限がないが、たとえば、刷毛塗り、スプレー塗布、およびスクリーン印刷等の方法を用いることができる。ペーストは、約 $1 \mu\text{m} \sim 2 \text{ mm}$ の厚さで塗布される。ペーストを塗布した後、熱プレスによって、燃料極または酸化剤極が作製される。加熱温度および加熱時間は、用いる材料によって適宜に選択されるが、たとえば、加熱温度 $100^\circ\text{C} \sim 250^\circ\text{C}$ 、加熱時間 $30 \text{ 秒間} \sim 30 \text{ 分間}$ とすることができる。

【0039】

以上は炭素粒子担持触媒を利用した例であるが、白金ブラック等、白金粒子をそのまま用いたり、多孔質金属に直接触媒を担持する構成とすることもできる。

【0040】

多孔質金属に直接触媒を担持する場合、多孔質金属表面に触媒となる金属をめっきする

。触媒の担持方法として、たとえば、電気めっき、無電解めっき等のめっき法、真空蒸着、化学蒸着（CVD）等の蒸着法などを用いることができる。

【0041】

電気めっきを行う場合、目的の触媒金属のイオンを含む水溶液中に多孔質金属シートを浸漬し、たとえば1V～10V程度の直流電圧を印加する。たとえば、Ptをめっきする場合、 $Pt(NH_3)_2(NO_2)_2$ 、 $(NH_4)_2PtCl_6$ 等を硫酸、スルファミン酸、リン酸アンモニウムの酸性溶液に加え、 $0.5 \sim 2 A/dm^2$ の電流密度にてめっきを行うことができる。また、複数の金属をめっきする場合、一方の金属が拡散律速となる濃度域において電圧を調節することにより、所望の割合でめっきすることができる。

また、無電解めっきを行う場合、目的の触媒金属のイオン、たとえばNi、Co、Cuイオンを含む水溶液に還元剤として次亜リン酸ナトリウムやホウ水素化ナトリウム等の還元剤を加え、この中に多孔質金属シートを浸漬し、 $90^\circ C \sim 100^\circ C$ 程度に加熱する。

【0042】

樹脂材質は、熱可塑性樹脂、エラストマー（ゴムを含む）など、射出成形可能な素材であればよいので、耐熱温度や、硬度等を考慮し、用途に応じて適宜選択すればよい。

【0043】

燃料電池に用いる燃料としては、メタノール、エタノール、ジエチルエーテルなどの有機液体燃料や水素含有ガスを用いることができる。特に、液体燃料を用いる燃料電池とした場合、本発明の効果がより顕著に発揮される。

【0044】

以下、図面を参照して本発明の実施形態について説明する。

【0045】

〔第一の実施の形態〕

本実施形態は、2個の単位セルが直列に接続した燃料電池の例である。図1は、本実施形態に係る燃料電池を構成する電極シート100の概略構造を示す図である。この電極シート100は、一平面内に配置された触媒を含む複数の電極104と、これらの周囲を囲む樹脂部102とを備える。一方の電極104には、引出電極106が設けられている。電極104は、多孔質金属に触媒層が形成された構成となっている。電極104および樹脂部102を構成する具体的材料は前述したものが挙げられるが、ここでは、SUS316の発泡金属により電極104を構成し、ポリエチレンにより樹脂部102を構成する。

【0046】

電極シート100は、たとえば以下のようにして作製することができる。

【0047】

SUS316の発泡金属を所定形状に切断したものをインサート部品としてインサート成形を行うことにより、電極である多孔質金属104a、104bと樹脂部102とを一体に備えた電極シート100を製造することができる。

引出電極106は、インサート成形を行う前に、多孔質金属104bの端部に導電性のある金属薄板（ここではSUS316薄板）を、あらかじめ溶接、あるいは一部分を重ねて抵抗溶接するなどして、接合する。

インサート成形の具体的な手法としては、図11に示す一对の型板A、B間に形成されたキャビティCの中に、インサート部品として多孔質金属を配置し、ランナDからゲートEを通じて射出した熔融樹脂FをキャビティC内に充填することにより、多孔質金属からなる電極104a、引出電極106が接合された104bと樹脂部102とが一体となった電極シート100が形成される。多孔質金属104と樹脂部102とは、多孔質金属104の側部に開口する気孔中、 $5 \mu m \sim 1000 \mu m$ 程度の深さまで熔融樹脂が含浸して硬化することにより強固に接合される。

たとえば樹脂部102の材料にポリエチレンを用いた場合、成形温度 $180^\circ C$ 、 $80 kN$ で型締めし、成形圧 $25 MPa$ で射出成形すると、電極シート100が得られる。

なお、インサート成形により電極シート100を形成する場合、型閉時のキャビティCの厚さ（型開閉方向の大きさ）は、多孔質金属104の厚さよりも小さくし、型閉時に型

板 A, B 間で、多孔質金属 104 が 3~90% 圧縮されるようにすると、射出樹脂圧により多孔質金属 104 をキャビティ C に対して固定できるとともに、多孔質金属 104 の平坦度を向上させることができる。

また多孔質金属 104 は、気孔径や気孔率が小さすぎると熔融樹脂が気孔に入り込めないのでアンカー効果が不十分となり、樹脂部 102 との接合強度が十分に得られず、接合部で剥離する虞がある。一方、気孔径や気孔率が大きすぎると、強度が不足し、樹脂成形圧および樹脂硬化時の圧縮に耐えられず、変形してしまう。したがって、気孔径 $10\mu\text{m}$ ~ 2mm 程度、気孔率は 40~98% 程度、好ましくは 40~80% 程度であるとより好ましい。

【0048】

図 2 は、図 1 に示す電極シートを用いた燃料電池の概略構造を示す図である。固体電解質膜 105 を挟んで一対の電極シート 100 が対向配置されている。電極シート 100 a には、燃料極 110 a および燃料極 110 b が設けられており、燃料極 110 a は、電極シート 100 b に設けられた酸化剤極と、金製のリベット 108 を介して接続されている。燃料極 110 b には、引出電極 106 が配設されている。

【0049】

図 3 は、図 2 の燃料電池の層構成を示した図である。燃料極 110 a および酸化剤極 112 b は、固体電解質膜 105 を挟んで互いに重なり合う位置関係で設けられる。この重なり位置に金製のリベット 108 が固体電解質膜 105 を貫通する形態で設けられ燃料極 110 a および酸化剤極 112 b が接続されている。

【0050】

図 2 および図 3 において、燃料極 110 a、燃料極 110 b、酸化剤極 112 a および酸化剤極 112 b は、いずれも、多孔質金属に触媒層を形成した構成を有している。多孔質金属は、前述したように、ステンレス鋼やニッケル等を発泡させ多孔質化した金属等を用いることができる。触媒としては、白金や白金-ルテニウム等を好ましく用いることができる。たとえば、酸化剤極の触媒として白金、燃料極の触媒として白金-ルテニウムを用いてもよい。このようにすれば、触媒活性の低下を抑制し、効率の良い燃料電池を実現することができる。

【0051】

図 4 は、図 2 および図 3 に示す燃料電池 101 の断面図である。図中、燃料極 110 a と酸化剤極 112 a、燃料極 110 b と酸化剤極 112 b が、それぞれ単位セルを構成する。燃料極 110 a と酸化剤極 112 b がリベット 108 により電氣的に接続され、図中左側の単位セルと右側の単位セルとが直列に接続した形態となっている。各電極の周囲は樹脂部 102 により取り囲まれている。また、固体電解質膜 105 を挟んで上側の電極シートと下側の電極シートとが樹脂部 102 の周縁で封着され、これらの電極シート間に固体電解質膜 105 が封止された構造となっている。

【0052】

図 2~4 に示した燃料電池は、以下のようにして作製することができる。まず、一平面内に配置された触媒を含む複数の多孔質金属と、これらの周囲を囲む樹脂部とを含む電極シート 100 を作製する。具体的には、前述したように射出成形により形成することができる。

【0053】

次いで、上記のようにして作製した一対の電極シート 100 を固体電解質膜 105 の両面にそれぞれ配置する。

【0054】

つづいて、電極シート 100 a に設けられた多孔質金属と電極シート 100 b に設けられた多孔質金属とが、固体電解質膜 105 を挟んで重なり合う位置に円柱状のリベット 108 を配し、この状態でホットプレスする。これにより、各電極シートの樹脂部 102 周縁が熱により融着する。また、リベット 108 は、燃料極 110 a、固体電解質膜 105 および酸化剤極 112 b からなる積層体を貫通するとともに、その上端および下端がつぶ

れて拡張した形状となり、これにより、燃料極 110a および電極シート 100b が接続される。

【0055】

ホットプレスの条件は、樹脂部 102 を構成する材料等に応じて選択される。通常は、樹脂部 102 を構成する樹脂の軟化温度やガラス転位温度を超える温度でプレスを行う。具体的には、例えば、温度 100～250℃、圧力 1～100 kg/cm²、時間 10 秒～300 秒とする。

【0056】

図 5 は、図 2～4 に示した燃料電池に燃料容器 116 を設けた構成を示す図である。燃料容器 116 は、例えばポリエチレン等の熱可塑性樹脂により構成することができ、燃料電池を構成する樹脂部 102 と接着させる。この燃料電池では、固体電解質膜 105 を挟み一方の側に燃料極が配置される構造となっているため、単一の燃料容器 116 によって複数の単位セルに対し燃料を供給可能な構成となる。

【0057】

図 5 の燃料電池では、燃料容器 116 および樹脂部 102 がいずれも樹脂により構成されるため、両者を熱融着や接着剤等の手段で確実に接合させることができる。このため、燃料容器と燃料電池の接続部分における燃料漏出の問題を有効に解決することができる。

【0058】

ここで、燃料容器 116 および樹脂部 102 を同じ樹脂材料で構成すれば、両者の間の密着性はより向上し、好ましい。

【0059】

【第二の実施の形態】

本実施形態では、一平面内に、マトリクス状に電極、セルの配置された燃料電池の例を示す。

【0060】

本実施形態に係る燃料電池の説明の前に、従来技術による燃料電池の構造を示す。図 6 は、従来の電極接続方式による燃料電池の一例を示す図である。この燃料電池では、樹脂部 102 に、2×2 の単位セル 120 が配置されている。隣接単位セル 120 間には引出電極 106 が設けられ、電解質膜の外側で電氣的に接続されている。図に示す燃料電池では、4 個の単位セルが直列に接続され合計の出力が得られるようになっている。

【0061】

しかしながら、この構成では、樹脂部 102 の周囲に引出電極 106 が張り出した構造となるため、燃料電池の小型化および高集積化の観点で改善の余地を有していた。また、この図では、それぞれの単位セルが樹脂部 102 の各辺に沿って配置されているため、引出電極 106 による電氣的接続が可能であったが、例えば図 7 のように 3×3 の単位セルの配置となると、中央部のセルを含めて直列に接続することが困難となる。

【0062】

図 7 および図 8 は、本実施形態による燃料電池の構成図である。図 7 は、本実施例に係る燃料電池の上面図であり、図 8 は断面図である。図 7 に示すように、この電池は、3×3 の単位セルが一平面に配列されており、隣接する単位セルがリベット 108 により接続されている。接続の方式は、第一の実施形態と同様であり、固体電解質膜 105 を貫通し、上下の一对の電極と接するリベット 108 により電氣的接続が取られている（図 8）。図示したように、上下の電極 110 および電極 112 がオーバーラップするように配置され、この部分にリベット 108 が配設されている。こうした接続部材により、この燃料電池では、図 9 に示すように 9 個の単位セル 120 が直列に接続された構成となる。

【0063】

燃料極 110 および酸化剤極 112 の構成は第一の実施の形態と同様であり、発泡ステンレス鋼等の多孔質金属に触媒層を形成した構成となっている。

【0064】

本実施形態によれば、樹脂部 102 の各辺に接していない単位セルについても電氣的

接続を確保することができ、燃料電池の集積度を顕著に向上させることが可能となる。また、電氣的接続を取るためのマージンが不要であり、燃料電池の小型化を一層促進することができる。さらに、図 8 に示す燃料電池では、燃料極 110 および酸化剤極 112 の周囲すべてが樹脂部 102 により覆われており、固体電解質膜 105 を挟む上下の電極シートが樹脂部 102 の融着により封止された構造としているため、燃料の漏出や電流リーク等を効果的に抑制することができる。

【0065】

また、本実施形態で用いられる多孔質金属の表面は、炭素材料に比べて親水性である。このため、たとえばメタノール等を含む液体燃料を燃料極に供給する場合、燃料極への液体燃料の浸透が従来の電極より促進される。このため、燃料の供給効率を向上させることができる。

【0066】

【第三の実施の形態】

本実施形態では、図 10 に示すように、燃料極 110 および酸化剤極 112 の周縁に沿って金属枠材 126 を設け、これを介してリベット 108 を配設し、セル間を接続する構成としている。こうすることにより、リベット 108 とセル間のコンタクト抵抗を低減することができる。

【実施例】

【0067】

【実施例 1】

以下の電極シートを作製し、図 1 に示した構成の燃料電池を作製した。

【0068】

電極：SUS316 を多孔質化した基材（気孔率 60%）

触媒：酸化剤極は白金、燃料極は白金（Pt）—ルテニウム（Ru）合金

リベット材質：金

電極シートを構成する樹脂：ポリエチレン

触媒は炭素微粒子（デンカブラック；電気化学社製）に担持させた触媒担持炭素微粒子を使用した。この触媒担持炭素微粒子 1 g にアルドリッチ・ケミカル社製 5 wt % ナフィオン溶液 18 ml を加え、50℃にて 3 時間超音波混合機で攪拌し触媒ペーストとした。このペーストを発泡 SUS316 上にスクリーン印刷法で塗布し、単位セル 120℃で乾燥させて電極を得た。

【0069】

次に、固体高分子電解質膜（デュポン社製ナフィオン（登録商標）、膜厚 150 μm）を用意し、これを、上記のようにして作製した一対の電極シートで挟み、単位セル 120℃で熱圧着した。このとき、図 1 に示す所定箇所に金製リベットを配置し、電極間を接続させた。

【0070】

さらに、たとえばポリプロピレンあるいはポリエチレン等の樹脂製の燃料容器を燃料極側に取り付け、図 5 に示す構造を作製した。

【0071】

この燃料電池の内部に 10% メタノール水溶液を 2 ml/min で流し、外部を大気中に曝して電池特性を測定したところ、電流密度 100 mA/cm² 時の電池電圧が 1.8 V であった。この電圧は、一つの単位セルで測定した場合の 2 倍の電圧に相当することから、二つの単位セルが直列接続されていることが確認された。

【図面の簡単な説明】

【0072】

【図 1】 実施形態に係る燃料電池を構成する電極シートの概略構造を示す図である。

【図 2】 図 1 に示す電極シートを用いた燃料電池の概略構造を示す図である。

【図 3】 図 2 の燃料電池の層構成を示した図である。

【図 4】 図 2 および図 3 に示す燃料電池の断面図である。

【図 5】 図 2 ～ 4 に示した燃料電池に燃料容器を設けた構成を示す図である。

【図 6】 従来の電極接続方式による燃料電池の一例を示す図である。

【図 7】 実施例に係る燃料電池の上面図である。

【図 8】 実施形態に係る燃料電池の構成図である。

【図 9】 実施形態に係る燃料電池におけるセル間の接続状態を説明する図である。

【図 1 0】 セル間の接続部材の他の態様を示す図である。

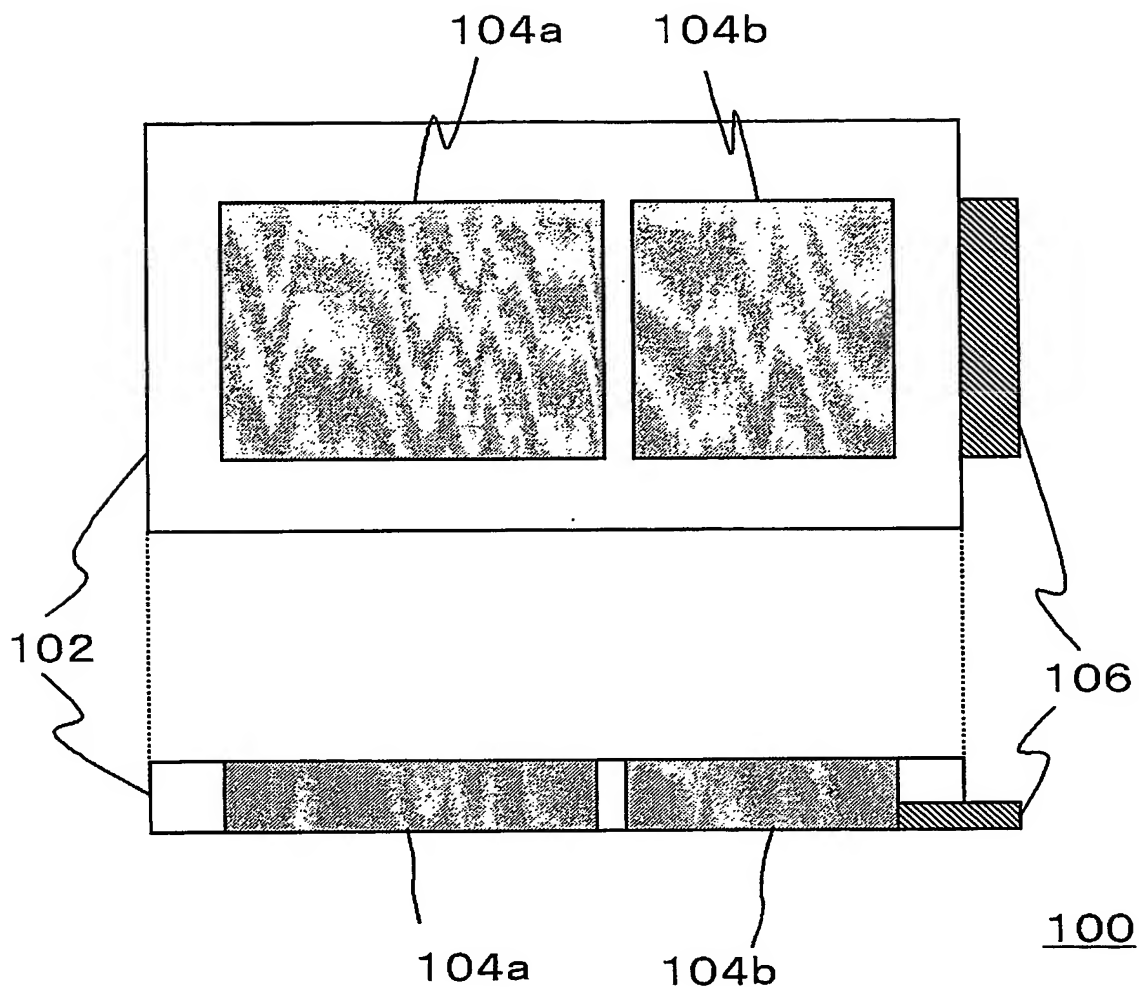
【図 1 1】 電極シートの形成方法を説明するための図である。

【符号の説明】

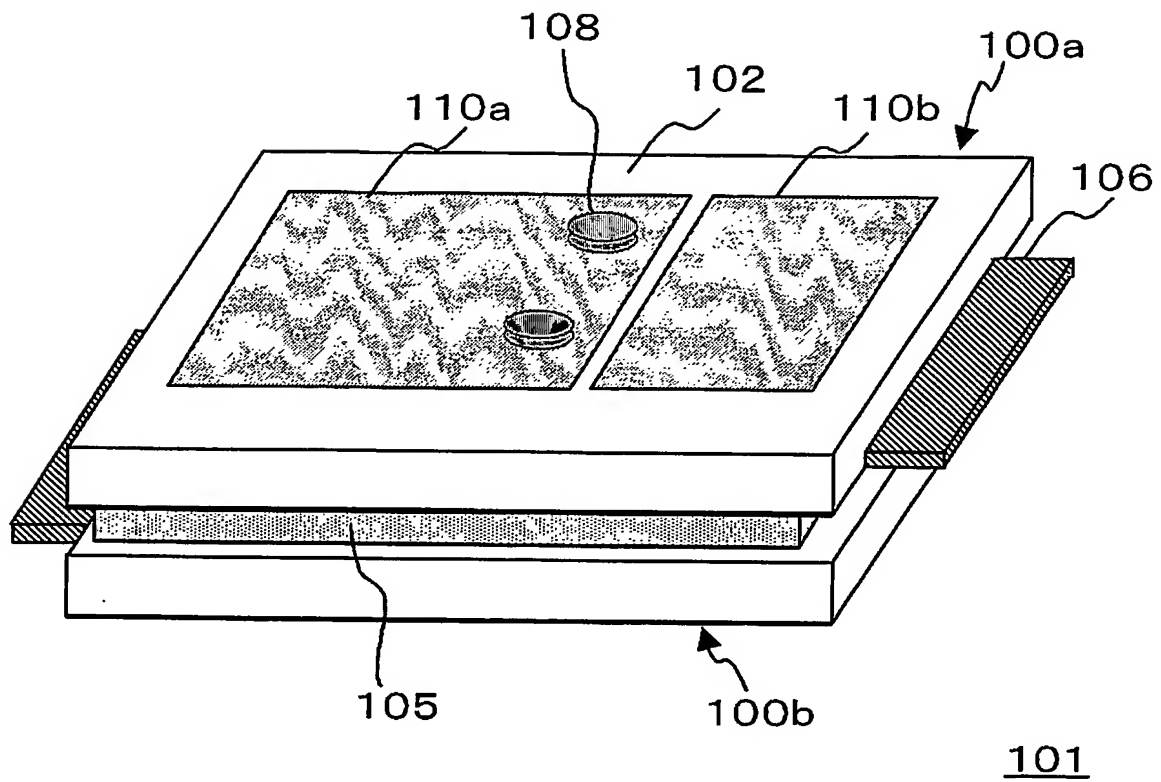
【 0 0 7 3 】

- 1 0 0 電極シート
- 1 0 2 樹脂部
- 1 0 4 電極
- 1 0 5 固体電解質膜
- 1 0 6 引出電極
- 1 0 8 リベット
- 1 1 0 燃料極
- 1 1 2 酸化剤極
- 1 1 6 燃料容器
- 1 2 0 単位セル
- 1 2 6 金属枠材

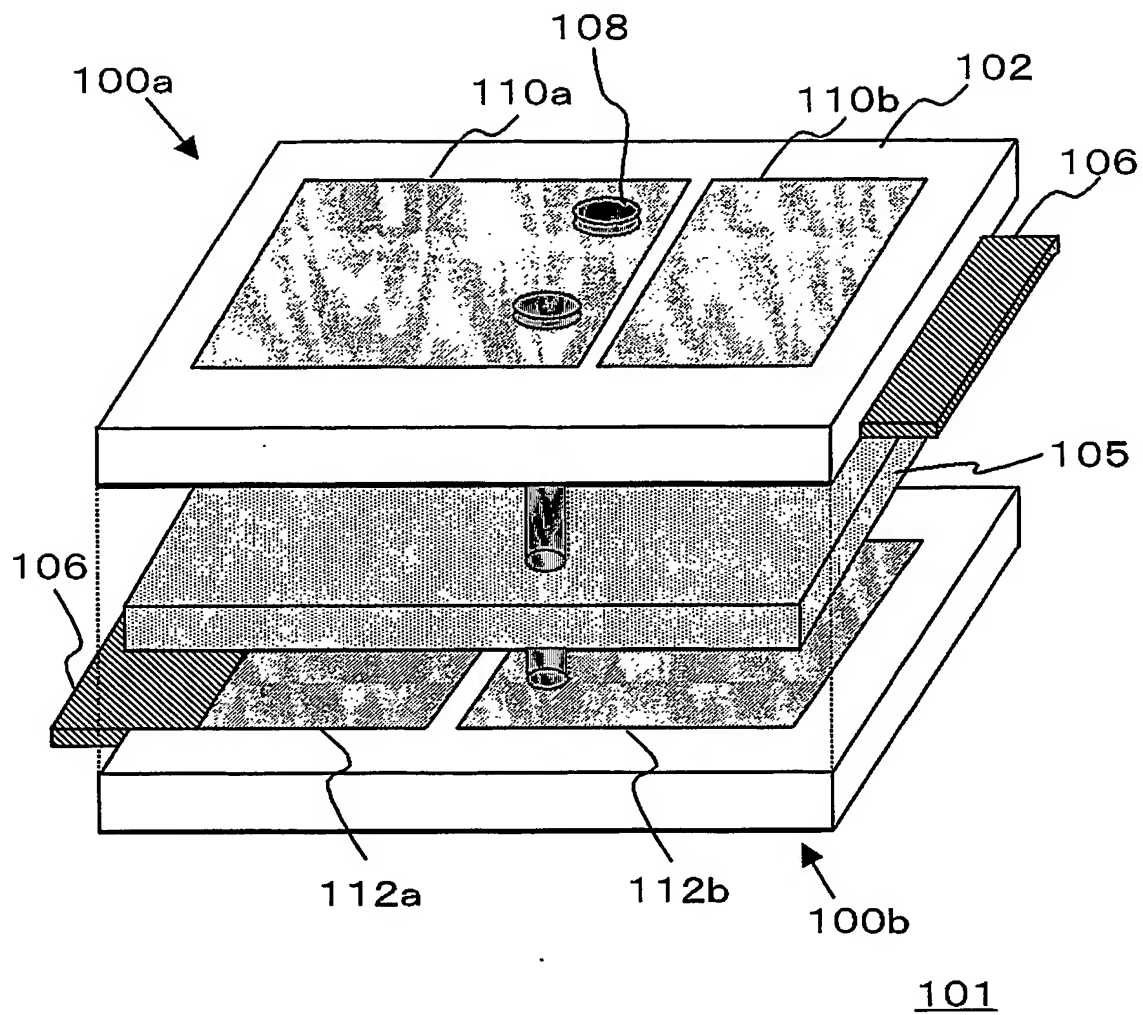
【書類名】 図面
【図 1】



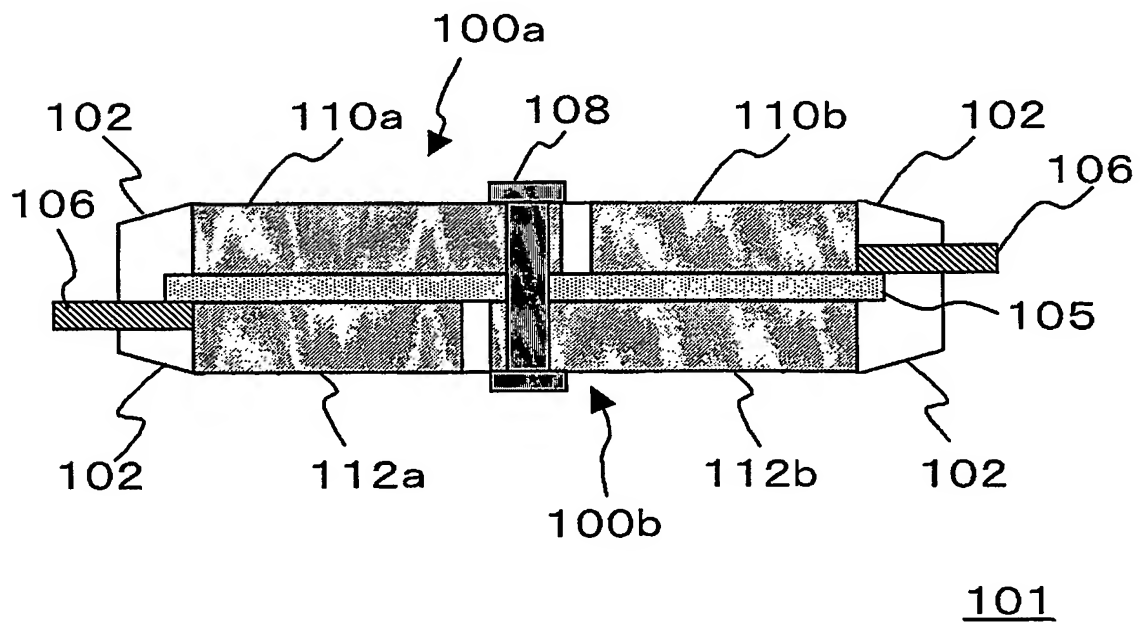
【図 2】



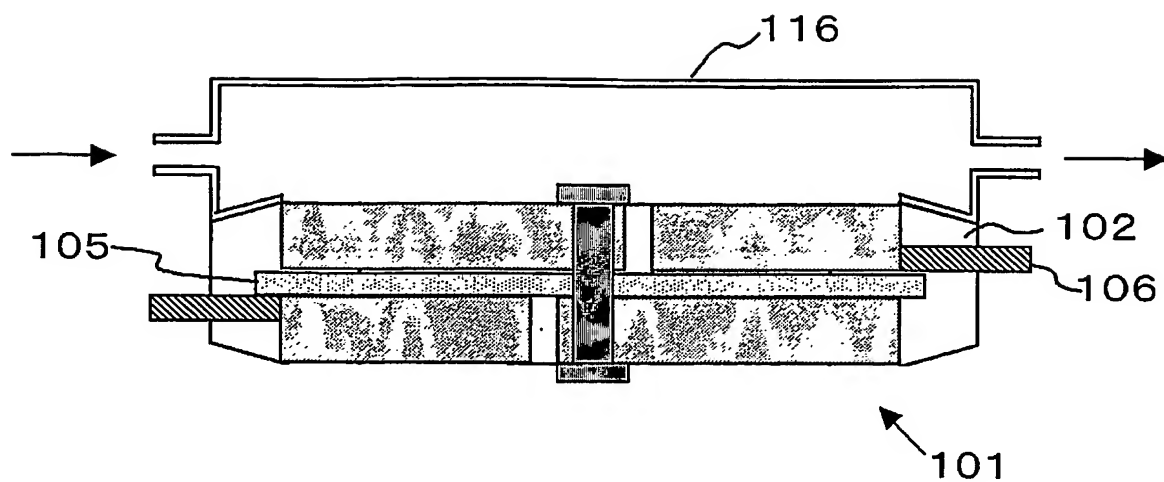
【図 3】



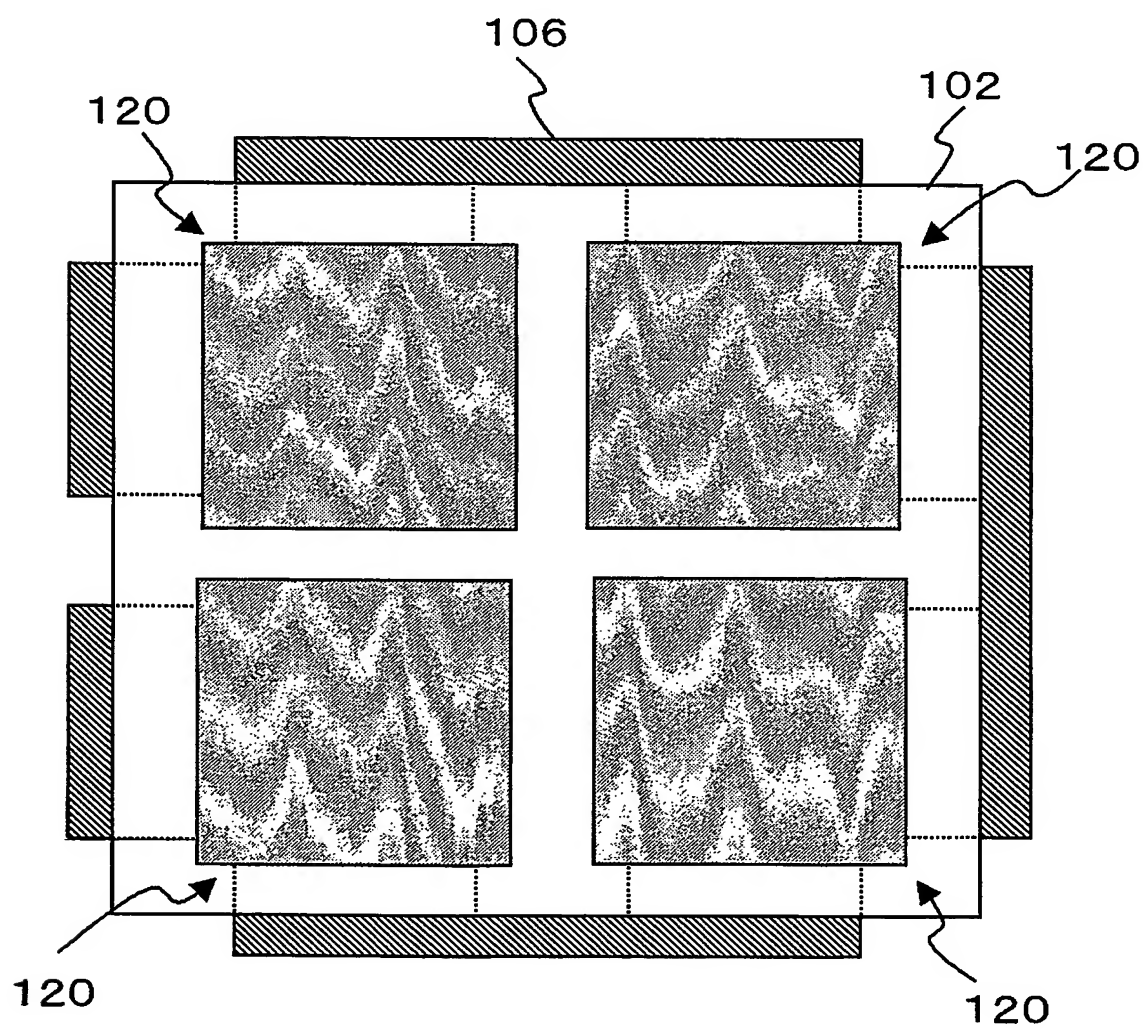
【図 4】



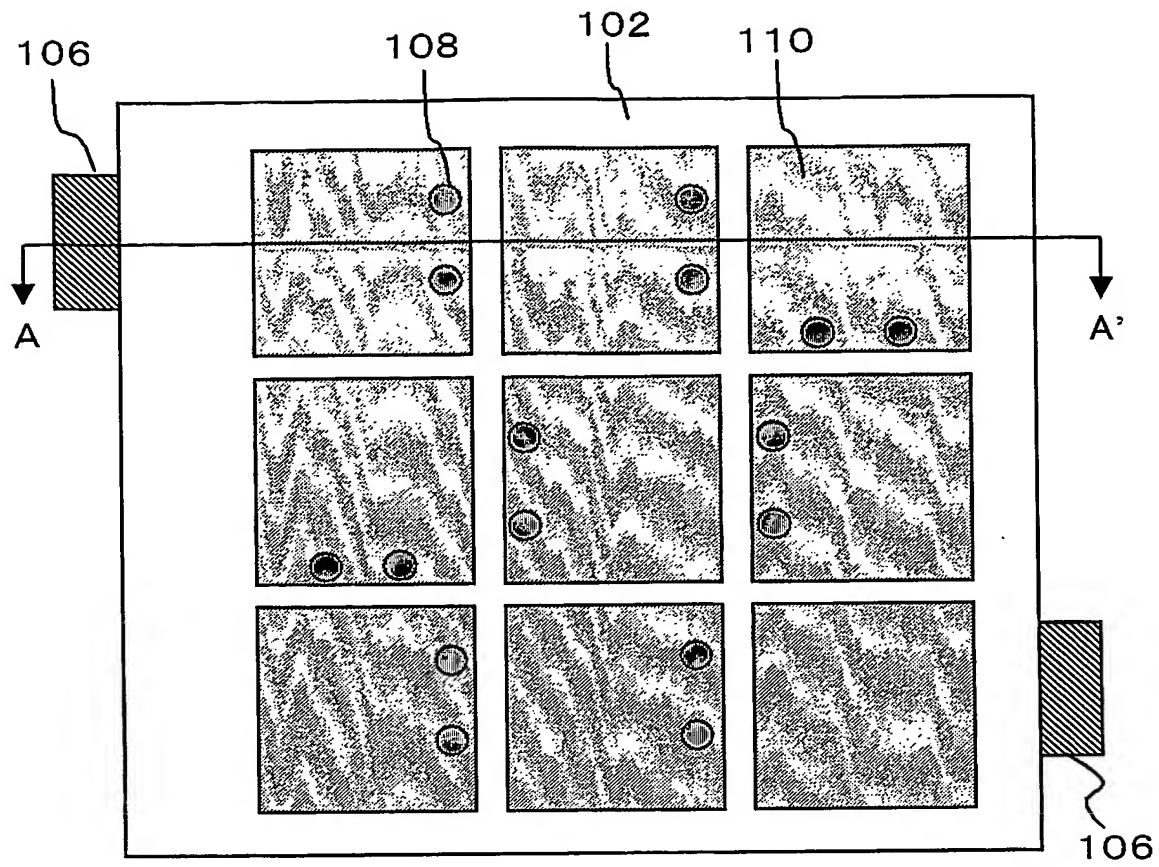
【図 5】



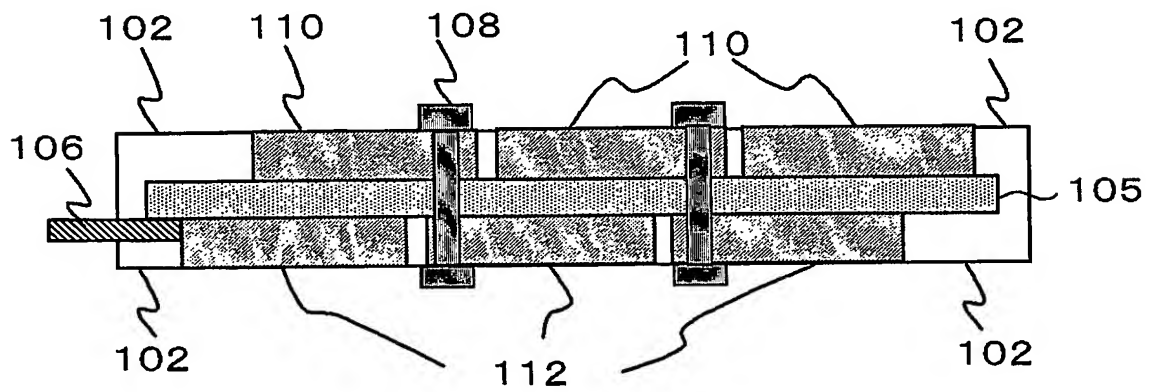
【図 6】



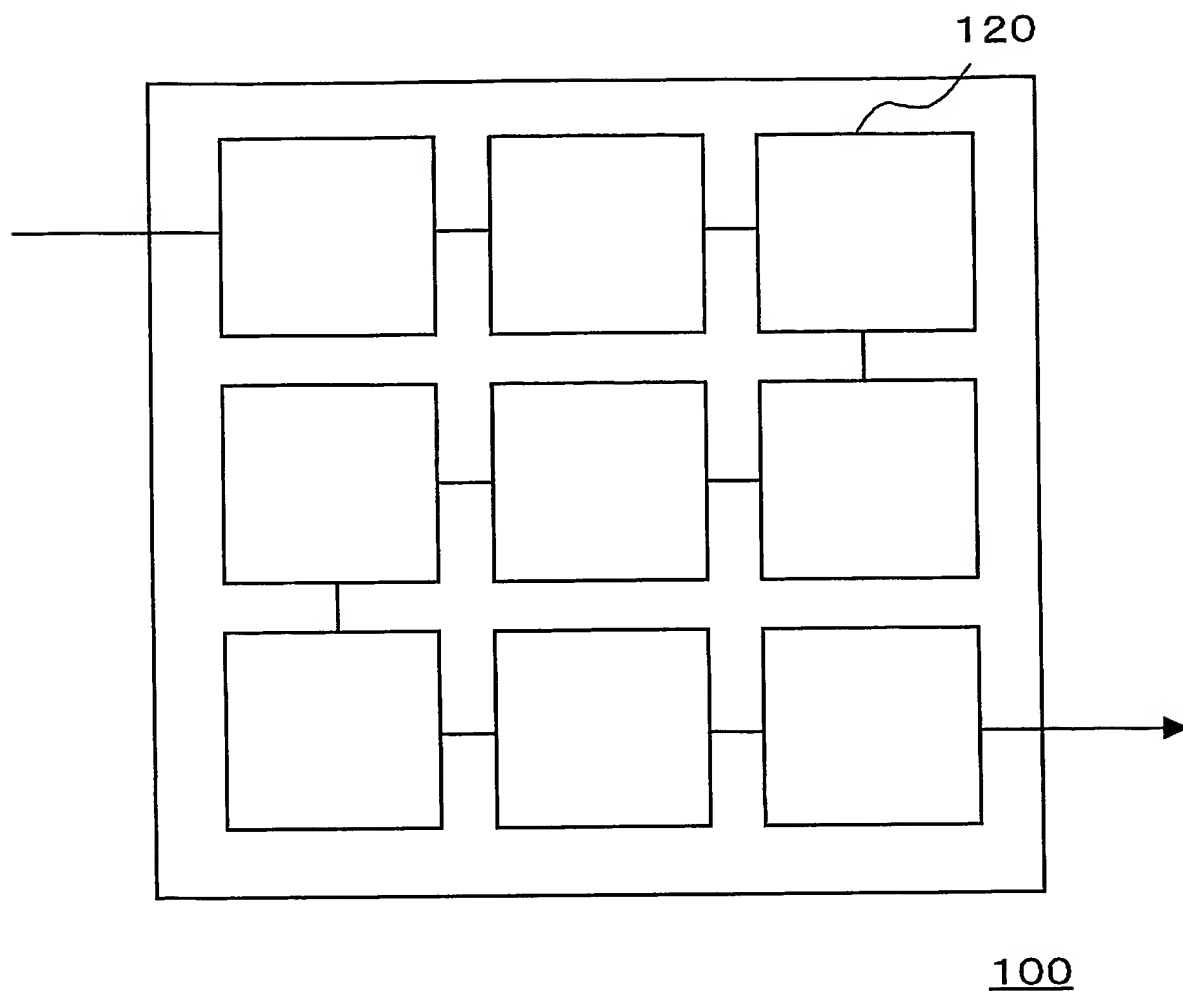
【図 7】



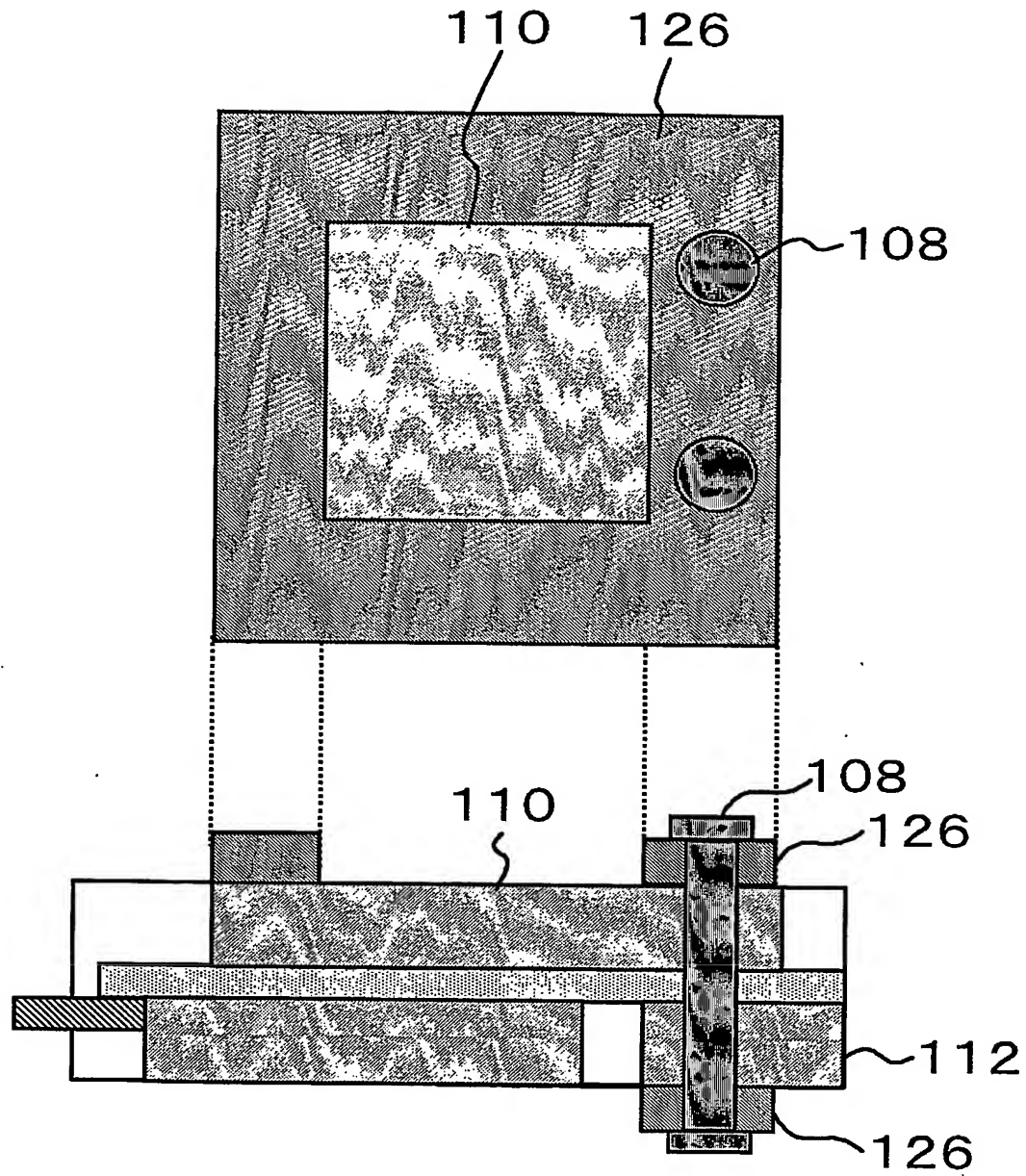
【図 8】



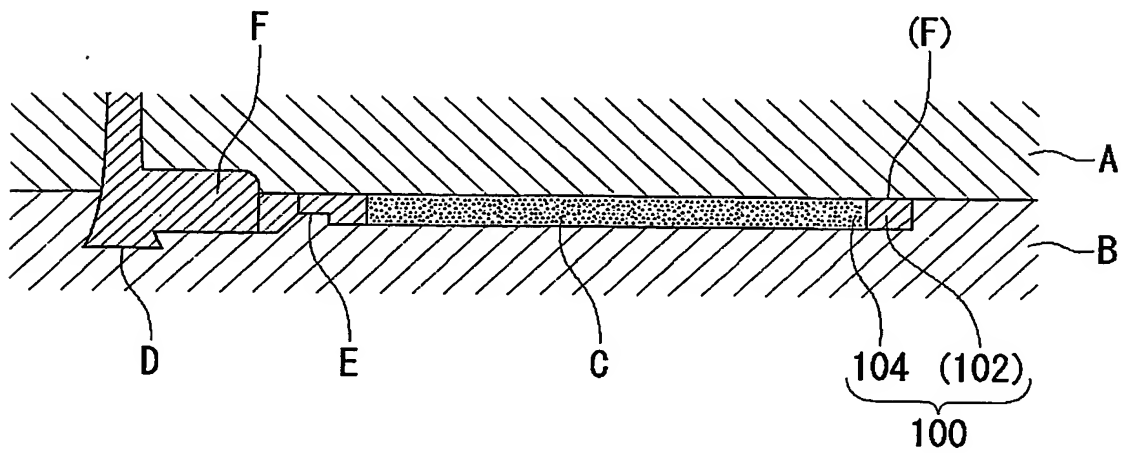
【図 9】



【図 10】



【図 11】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 簡素な構造を有し、高出力かつ小型化・薄型化された固体高分子型燃料電池を提供する。

【解決手段】 複数の電極（燃料極 1 1 0、酸化剤極 1 1 2）およびこれらの周囲を囲む樹脂部 1 0 2 からなる電極シートを、固体電解質膜 1 0 5 の両面に配設する。電極シートの樹脂部 1 0 2 周縁を封着し、固体電解質膜 1 0 5 を内部に封止した構造とする。燃料極 1 1 0 および酸化剤極 1 1 2 は、発泡 S U S 等の多孔質金属に触媒が担持された構成とする。

【選択図】 図 3

特 願 2 0 0 3 - 3 7 6 5 1 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 4 2 3 7]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 9 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号
氏 名	日本電気株式会社

特願 2 0 0 3 - 3 7 6 5 1 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 6 2 6 4]

1. 変更年月日

1 9 9 2 年 4 月 1 0 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都千代田区大手町 1 丁目 5 番 1 号

氏 名

三菱マテリアル株式会社